

22 DEC 2004

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2004 年 1 月 8 日 (08.01.2004)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/003026 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C08F 8/04, (MINE, Toshihiro) [JP/JP]; 〒745-0843 山口県 徳山市 新宮町1番1号 Yamaguchi (JP).
232/06, C09J 109/06, 125/10, 145/00
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2002/006392 (74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒105-0001 東京都 港区 虎ノ門 3 丁目 2 5 番 2 号 プリヂストン虎ノ門ビル 6 階 Tokyo (JP).
- (22) 国際出願日: 2002 年 6 月 26 日 (26.06.2002)
- (25) 国際出願の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): CA, CN, ID, KR, SG, US.
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光石油化学株式会社 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒130-0015 東京都 墨田区 横網一丁目 6 番 1 号 Tokyo (JP). 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- (72) 発明者; および 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 三根 利博 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: HYDROGENATED COPOLYMER, PROCESS FOR PRODUCING THE SAME, AND HOT-MELT ADHESIVE COMPOSITION CONTAINING THE SAME

(54) 発明の名称: 共重合体水素添加物、その製造方法及びそれを用いたホットメルト接着剤組成物

(57) Abstract: A hydrogenated copolymer which is a product of hydrogenation of a copolymer having a softening point as measured by the ball-and-ring method of 45 to 55°C and which has a softening point as measured by the ball-and-ring method of 85 to 95°C; and a hot-melt adhesive composition containing the hydrogenated copolymer. The hydrogenated copolymer has a reduced weight loss on heating and has a satisfactory hue after heating. The hot-melt adhesive composition, which contains the hydrogenated copolymer, has excellent flowability during heating, has a reduced weight loss on heating, changes little in hue upon heating, and has excellent thermal stability.

(57) 要約:

ボール&リング法で測定した軟化点が 45～55℃の範囲にある共重合体の水素添加物であって、ボール&リング法で測定した軟化点が 85～95℃である共重合体水素添加物、及びこの共重合体水素添加物を含むホットメルト接着剤組成物である。

本発明の共重合体水素添加物は、加熱した際の重量減少率が小さく、加熱後の色相が良好であり、それを含むホットメルト接着剤組成物は、加熱時の流動性に優れると共に、加熱減量及び加熱色相変化が小さく、熱安定性に優れている。

WO 2004/003026 A1

明細書

共重合体水素添加物、その製造方法及びそれを用いたホットメルト
接着剤組成物

技術分野

本発明は、共重合体水素添加物、その製造方法及びそれを用いたホットメルト接着剤組成物に関し、さらに詳しくは、加熱した際の重量減少率が小さく、加熱後の色相が良好であり、かつ接着付与性を有し、ホットメルト接着剤の一成分などとして好適な共重合体水素添加物、その製造方法、及び前記共重合体水素添加物を含み、加熱時の流動性に優れると共に、加熱減量及び加熱色相変化が小さく、熱安定性に優れ、かつ良好な耐候性を有するホットメルト接着剤組成物に関する。

背景技術

近年、ホットメルト接着剤は、高速塗工性、速硬性、バリエーション性、省エネルギー性、経済性などに優れることから、各種の分野において利用が拡大している。一般的なホットメルト接着剤としては、例えば天然ゴム、エチレン-酢酸ビニル共重合体、スチレン-ブタジエンスチレンブロック共重合体及びその水素化物、スチレン-イソプレンスチレンブロック共重合体及びその水素化物などのベースポリマーに、粘着付与樹脂や可塑剤などを配合した組成物が使用されている。上記粘着付与樹脂としては、一般に石油樹脂やクマロン系樹脂、フェノール系樹脂、テルペン系樹脂、ロジン系樹脂及びそれらの水素化物などが用いられている。

このようなホットメルト接着剤は、使用時に加熱溶融させて塗布する

必要があるので、加熱減量の多いものは、加熱溶融の際に発生する白煙のため、作業者の健康を損なう懸念がある。また、最終製品の接着性能に悪影響を及ぼしたり、加熱後に色相が悪化することにより、最終製品の美観を損なうなど、好ましくない事態を招来する。

発明の開示

本発明は、このような状況下で、加熱した際の重量減少率が小さく、加熱後の色相が良好であり、かつ接着付与性を有し、ホットメルト接着剤の一成分などとして好適な共重合体水素添加物、及び該共重合体水素添加物を含み、加熱時の流動性に優れると共に、加熱減量及び加熱色相変化が小さく、熱安定性に優れ、かつ良好な耐候性を有するホットメルト接着剤組成物を提供することを目的とするものである。

本発明者は、前記の好ましい性質を有する共重合体水素添加物及びホットメルト接着剤組成物を開発すべく鋭意研究を重ねた結果、軟化点が特定の低い範囲にある共重合体を水素添加することにより得られ、かつ軟化点が特定の範囲にある共重合体水素添加物により、その目的を達成し得ることを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち、本発明は、

(1) ボール&リング法で測定した軟化点が45～55℃の範囲にある共重合体の水素添加物であって、ボール&リング法で測定した軟化点が85～95℃であることを特徴とする共重合体水素添加物、

(2) 共重合体がシクロペンタジエン及び／又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物から得られたものである上記(1)の共重合体水素添加物、

(3) ボール&リング法で測定した軟化点が45～55℃の範囲にある共重合体を水素添加処理することを特徴とするボール&リング法で測定した軟化点が85～95℃である共重合体水素添加物の製造方法、

(4) 共重合体がシクロペンタジエン及び／又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物から得られたものである上記(3)の共重合体水素添加物の製造方法、

(5) 上記(1)の共重合体水素添加物を含むことを特徴とするホットメルト接着剤組成物、

(6) 共重合体がシクロペンタジエン及び／又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物から得られたものである上記(5)のホットメルト接着剤組成物、及び

(7) さらに、ベースポリマー及び可塑剤を含む上記(5)、(6)のホットメルト接着剤組成物、
を提供するものである。

発明を実施するための最良の形態

本発明の共重合体水素添加物においては、水素添加前の共重合体として、ボール&リング法で測定した軟化点が45～55℃の範囲にある共重合体を用いられる。本発明においては、この共重合体として、シクロペンタジエン及び／又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物から得られた共重合体を用いることができる。

なお、上記のボール&リング法により測定した軟化点とは、J A I 7-1999に準拠し、測定して得られた軟化点を示す。

前記共重合体において、原料モノマーの一成分として用いられるビニル置換芳香族化合物としては、例えばスチレン、 α -メチルスチレン、

ビニルトルエンなどが挙げられ、これらは一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

当該共重合体は適当な溶媒中において、原料モノマーであるシクロペンタジエン及び／又はジシクロペンタジエンと前記ビニル置換芳香族化合物とを共重合反応させることにより、製造される。ここで、溶媒としては、例えばベンゼン、トルエン、キシレン、シクロヘキサン、ジメチルシクロヘキサン、エチルシクロヘキサンなどの炭化水素化合物等を好ましく用いることができる。これらは一種を単独で用いてもよく、二種以上を混合して用いてもよい。また、この溶媒の使用量は、モノマー 100 質量部に対し、通常 50～500 質量部、好ましくは 60～300 質量部の範囲で選定される。

重合方法としては、前記溶媒を、好ましくは 100℃以上、より好ましくは 150℃以上に加熱し、この加熱された溶媒中に、シクロペンタジエン及び／又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物とのモノマー混合物を、分割添加しながら、共重合を行う方法が有利である。

シクロペンタジエン及び／又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物との使用割合については特に制限はないが、通常質量基準で、70：30ないし20：80、好ましくは60：40ないし40：60の範囲である。また、分割添加時間は、通常0.5～5時間程度、好ましくは1～3時間である。なお、分割は等分に添加することが好ましい。

この共重合反応においては、シクロペンタジエン及び／又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物とのモノマー混合物を分割添加し終った後も、引き続き反応させることが望ましい。その際の反応条

件については特に制限はないが、反応温度は、通常 200～350℃程度、好ましくは 250～300℃、反応圧力は、通常 0～2 MPa・G 程度、好ましくは 0～1.5 MPa・G、反応時間は、通常 0.5～8 時間程度、好ましくは 1～5 時間である。

反応終了後、反応生成液を、例えば温度 100～300℃程度、圧力 0.1～10 kPa 程度で、1～3 時間程度揮発分を除去処理することにより、目的の共重合体を得られる。

このようにして得られた共重合体においては、ボール&リング法で測定した軟化点は 45～55℃の範囲にあることが必要であり、また、一般に、ビニル置換芳香族化合物単位の含有量は 30～90 質量%、臭素価は 30～90 g/100 g、数平均分子量は 400～1,000 程度である。なお、上記数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）法で測定したポリスチレン換算の値である（以下同様）。

本発明においては、このようにして得られた軟化点（ボール&リング法）が 45～55℃の範囲にある共重合体を水素添加処理することにより、本発明の共重合体水素添加物を製造する。

この水素添加反応においては、触媒としてニッケル、パラジウム、コバルト、白金、ロジウム系などの触媒が用いられる。そして、適当な溶媒、例えばシクロヘキサン、テトラヒドロフランなどの溶媒中において、前記触媒の存在下、前述の共重合体を、温度 120～300℃程度、好ましくは 150～250℃、反応圧力 1～6 MPa・G 程度、反応時間 1～7 時間程度、好ましくは 2～5 時間の条件で水素添加する。

反応終了後、反応生成液を、例えば温度 100～300℃程度、圧力 0.1～10 kPa 程度で、1～3 時間程度揮発分を除去処理すること

により、本発明の共重合体水素添加物が得られる。

このようにして得られた本発明の共重合体水素添加物においては、ボール&リング法で測定した軟化点は85～95℃の範囲にあることが必要であり、また、一般に、ビニル置換芳香族化合物単位の含有量は0～35質量%、臭素価は0～30 g / 100 g、数平均分子量は400～1000程度である。

前記本発明の共重合体水素添加物は、加熱した際の重量減少率が小さく、加熱後の色相が良好であり、かつ粘着付与性を有し、ホットメルト接着剤の一成分などとして好適である。

次に、本発明のホットメルト接着剤組成物は、前述の本発明の共重合体水素添加物を必須成分として含むものであって、通常該共重合体水素添加物以外に、ベースポリマー、可塑剤などが含まれている。

前記ベースポリマーとしては特に制限はなく、ホットメルト接着剤におけるベースポリマーとして一般に使用されているものの中から、任意のものを適宜選択して用いることができる。このベースポリマーの具体例としては、天然ゴム、エチレン-酢酸ビニル共重合体、非晶性ポリ α -オレフィン、あるいはスチレン-ブタジエンスチレンブロック共重合体(SBS)、スチレン-イソプレンスチレンブロック共重合体(SIS)及びこれらの水素添加して得られるスチレン-エチレン-ブチレン-スチレンゴム(SEBS)、スチレン-エチレン-プロピレン-スチレンゴム(SEPS)などが挙げられる。これらは、一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

一方、可塑剤としては特に制限はなく、ホットメルト接着剤における可塑剤として一般に使用されているものの中から、任意のものを適宜選択して用いることができる。この可塑剤の具体例としては、原油を常圧

蒸留することにより得られる重油留分を減圧蒸留し、さらに水素化改質、脱ロウ処理などで精製することにより得られるパラフィン系プロセスオイル、あるいは減圧蒸留後、溶剤抽出や水添、白土処理によって得られるナフテン系プロセスオイル、さらにはポリブテン、液状のポリ α -オレフィンなどが挙げられる。これらは、一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせ用いてもよい。

本発明のホットメルト接着剤組成物における各成分の含有割合としては、要求される物性によって異なるが、通常共重合体水素添加物 30～70 質量%、ベースポリマー 15～40 質量%、可塑剤 10～40 質量%の範囲である。

本発明のホットメルト接着剤組成物には、前記の共重合体水素添加物、ベースポリマー及び可塑剤以外に、要求される物性が損なわれない範囲で、必要に応じ酸化防止剤、ワックス、フィラーなどを含有させることができる。

本発明のホットメルト接着剤組成物の調製方法としては特に制限はなく、例えばプロペラ式攪拌機、二軸混練機、ニーダーなどを用いて、各成分を加熱溶融混合又は混練する方法などを用いることができる。各成分の配合順序については特に制限はなく、また、加熱温度についても特に制限はないが、通常 120～190℃の範囲の温度で、加熱溶融混合又は混練が行われる。

このようにして得られた本発明のホットメルト接着剤組成物は、加熱時の流動性に優れると共に、加熱減量及び加熱色相変化が小さく、熱安定性に優れ、かつ良好な耐候性を有しており、例えば衛生材料用、包装用、製本用、繊維用、木工用、電気材料用、製缶用、建築用、製袋用、道路用バインダーなど、様々な分野に利用することができる。

次に、本発明を実施例により、さらに詳細に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

なお共重合体及び共重合体水素添加物の物性並びにホットメルト接着剤組成物の性能評価は、以下に示す方法に従って行った。

<共重合体、共重合体水素添加物の物性>

(1) 軟化点

J A I 7-1999に準拠し、ボール&リング法により測定した。

(2) スチレン単位含有量

赤外分光光度計（波数700 cm⁻¹の吸光度）により、定量した。

(3) 臭素価

J I S K 2605に準拠して測定した。

<共重合体水素添加物の物性>

(4) 加熱減量

共重合体水素添加物2gをアルミニウム製シャーレに入れ、180℃で1時間加熱した際の減量を測定し、下記の式より加熱減量を求めた。

$$\text{加熱減量 (\%)} = [(\text{加熱前重量} - \text{加熱後重量}) / \text{加熱前重量}] \times 100$$

(5) 加熱色相

共重合体水素添加物20gをガラスビンに入れ、180℃で48時間加熱したのち、トルエンに溶解し、J I S K 6901に準拠してガードナー色相を測定した。

<ホットメルト接着剤組成物の性能>

(6) 加熱減量、加熱色相

上記(4)、(5)と同様にして測定した。

(7) 軟化点

J I S K 2 2 0 7 に準拠して測定した。

(8) 熔融粘度

J I S K 6 8 6 2 に準拠し、B型粘度計を用いて測定した。

(9) 粘着力

J I S Z 0 2 3 7 に準拠して測定した。

(10) ループタック

F I N A T テスト規格に準拠して測定した。

(11) 保持力

J I S Z 0 2 3 7 に準拠して測定した。

製造例 1

窒素で置換した攪拌機付きの 1 リットル重合反応器にキシレン 3 8 2 g を入れ、2 6 0 °C に加熱し、攪拌しながら、これにジシクロペンタジエン 1 5 9 g とスチレン 1 5 9 g との混合物を 1 2 0 分間かけて添加した。その後、引き続き 1 1 0 分間共重合反応を行った。

反応終了後、反応生成液を取り出し、ロータリーエバポレーターを用いて、温度 2 0 0 °C、圧力 1 . 3 k P a で 2 時間処理し、未反応モノマーとキシレンを除去してシクロペンタジエンとスチレンとの共重合体 2 8 7 g を得た。この共重合体の物性を第 1 表に示す。

製造例 2

製造例 1 において、モノマー混合物を添加したのち、引き続き 1 3 0 分間共重合反応を行った以外は、製造例 1 と同様にして共重合体を得た。この共重合体の物性を第 1 表に示す。

実施例 1

窒素で置換した攪拌機付きの 3 0 0 ミリリットル反応器に、シクロヘキサン 7 0 g、製造例 1 で得た共重合体 7 0 g 及びニッケル系触媒 1 .

5 g を入れ、水素圧力 4 MP a 、温度 2 3 0 °C で 4 時間水素添加反応を行った。

反応終了後、反応生成液を取り出し、酸化防止剤〔チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社製、商品名「イルガノックス 1 0 1 0」4, 0 0 0 p p m を添加したのち、ロータリーエバポレーターを用いて、温度 2 0 0 °C、圧力 6 7 0 P a で 3 時間処理して、シクロヘキサンを除去することにより、シクロペンタジエンとスチレンとの共重合体水素添加物 7 0 g を得た。この共重合体水素添加物の物性を第 1 表に示す。

比較例 1

実施例 1 において、製造例 1 で得た共重合体の代わりに、製造例 2 で得た共重合体を用いた以外は、実施例 1 と同様にして水素添加反応を行った。

反応終了後、反応生成液を取り出し、酸化防止剤〔チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社製、商品名「イルガノックス 1 0 1 0」4, 0 0 0 p p m を添加したのち、ロータリーエバポレーターを用いて、温度 2 0 0 °C、圧力 1 . 3 k P a で 1 時間処理して、シクロヘキサンを除去することにより、シクロペンタジエンとスチレンとの共重合体水素添加物 7 0 g を得た。この共重合体水素添加物の物性を第 1 表に示す。

第1表

	製造例1	製造例2	実施例1	比較例1
軟化点 (°C)	50	60	91	90
スチレン単位含有量 (質量%)	48	47	2	2
臭素価 (g/100g)	55	55	3	3
加熱色相 [ガードナー]	—	—	4	7
加熱減量 (質量%)	—	—	6.3	9.6

第1表に示すように、製造例1で得た共重合体の軟化点は50℃であるのに対し、実施例1で得られた共重合体水素添加物の軟化点は91℃であった。また、実施例1で得た水素添加物を180℃、1時間加熱した際の加熱減量は6.3質量%であり、180℃、48時間加熱した際のガードナー色相は7であった。

これに対し、製造例2で得た共重合体の軟化点は60℃であり、比較例1で得られた共重合体水素添加物の軟化点は90℃であった。また、比較例1で得た水素添加物を180℃、1時間加熱した際の加熱減量は9.6質量%であり、180℃、48時間加熱した際のガードナー色相は4であった。

このように、実施例1で得た共重合体水素添加物は、比較例1で得た共重合体水素添加物よりも加熱減量が少なく、加熱後の色相も良好であった。

実施例2

実施例1で得た共重合体水素添加物と、SEBS共重合体〔シェルジヤパン（株）製、商品名「クレイトンG1652」、スチレン成分／ゴ

ム成分質量比＝２９／７１〕と、オイル〔出光興産（株）製、商品名「ＰＳ－３２」〕と、酸化防止剤〔チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社製、商品名「イルガノックス１０１０」〕とを、第２表に示す割合で用い、混練機ラボプラストミルにより、１４０℃で４０分間混練してホットメルト接着剤組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第２表に示す。

比較例 ２

実施例 ２において、実施例 １で得た共重合体水素添加物の代わりに、比較例 １で得た共重合体水素添加物を用いた以外は、実施例 ２と同様に、ホットメルト接着剤組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第２表に示す。

第 ２ 表

		実施例 ２	比較例 ２
配合割合 (質量部)	SEBS (クレイトン G1652)	20	20
	実施例 １の共重合体水素添加物	60	—
	比較例 １の共重合体水素添加物	—	60
	オイル (PS-32)	20	20
	酸化防止剤 (イルガノックス 1010)	1	1
性 能	軟化点 (℃)	82	82
	熔融粘度 [160℃] (mPa・s)	2400	2480
	粘着力 [23℃] (N/cm)	8.5	8.6
	ループタック [23℃] (N/cm)	5.4	5.3
	保持力 [50℃] (mm/h)	0.8	0.7
	加熱色相 [ガードナー]	6	8
	加熱減量 (質量%)	2.1	3.6

第2表によれば、実施例2で調製したホットメルト接着剤組成物は、比較例2で調製したホットメルト接着剤組成物と比べて、粘着力、ループタック、保持力はほぼ同等であるが、加熱時の減量と色相は改善されている。

産業上の利用可能性

本発明によれば、加熱した際の重量減少率が小さく、加熱後の色相が良好であり、かつ粘着付与性を有し、ホットメルト接着剤の一成分などとして好適な共重合体水素添加物を提供することができる。

また、前記共重合体水素添加物を含む本発明のホットメルト接着剤組成物は、加熱時の流動性に優れると共に、加熱減量及び加熱色相変化が小さく、熱安定性に優れ、かつ良好な耐候性を有している。

請求の範囲

1. ボール&リング法で測定した軟化点が45～55℃の範囲にある共重合体の水素添加物であって、ボール&リング法で測定した軟化点が85～95℃であることを特徴とする共重合体水素添加物。
2. 共重合体がシクロペンタジエン及び／又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物から得られたものである請求項1記載の共重合体水素添加物。
3. ボール&リング法で測定した軟化点が45～55℃の範囲にある共重合体を水素添加処理することを特徴とするボール&リング法で測定した軟化点が85～95℃である共重合体水素添加物の製造方法。
4. 共重合体がシクロペンタジエン及び／又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物から得られたものである請求項3記載の共重合体水素添加物の製造方法。
5. 請求項1記載の共重合体水素添加物を含むことを特徴とするホットメルト接着剤組成物。
6. 共重合体がシクロペンタジエン及び／又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物から得られたものである請求項5記載のホットメルト接着剤組成物。

7. さらに、ベースポリマー及び可塑剤を含む請求項 5 又は 6 記載のホットメルト接着剤組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/JP02/06392

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C08F8/04, C08F232/06, C09J109/06, C09J125/10, C09J145/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08F8/04, C08F232/06, C09J109/06, C09J125/10, C09J145/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI (L)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 5-194629 A (Tonex Co., Ltd.), 03 August, 1993 (03.08.93), Claims; Par. Nos. [0016] to [0019] (Family: none)	1, 3, 5 2, 4, 6, 7
Y	JP 11-335645 A (Arakawa Chemical Industries, Ltd.), 07 December, 1999 (07.12.99), Claims (Family: none)	1-7
A	EP 149909 A2 (Exxon Research and Engineering Co.), 31 July, 1985 (31.07.85), Claims; examples 1 to 28 & JP 7-316524 A Claims; examples 1 to 4 & US 4650829 A	1-7

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier document but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
30 September, 2002 (30.09.02)

Date of mailing of the international search report
15 October, 2002 (15.10.02)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.
PCT/JP02/06392

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 11-286514 A (Arakawa Chemical Industries, Ltd.), 19 October, 1999 (19.10.99), Claims (Family: none)	1-7
A	EP 845484 A2 (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.), 03 June, 1998 (03.06.98), Claims & JP 11-130820 A Claims & US 6040388 A & US 6376630 A	1-7
A	JP 10-176012 A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.), 30 June, 1998 (30.06.98), Claims (Family: none)	1-7
A	JP 6-93015 A (Japan Synthetic Rubber Co., Ltd.), 05 April, 1994 (05.04.94), Claims (Family: none)	1-7

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08F8/04, C08F232/06, C09J109/06, C09J125/10,
C09J145/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08F8/04, C08F232/06, C09J109/06, C09J125/10,
C09J145/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI (L)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P 5-194629 A (トーネックス株式会社)	1, 3, 5
Y	1993. 08. 03, 特許請求の範囲, 【0016】 - 【0019】 (ファミリーなし)	2, 4, 6, 7
Y	J P 11-335645 A (荒川化学工業株式会社)	1-7
	1999. 12. 07, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	
A	E P 149909 A2 (Exxon Research and Engineering Com	1-7

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

30. 09. 02

国際調査報告の発送日

15.10.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

佐藤 邦彦

4 J

8215

電話番号 03-3581-1101 内線 6844

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	pany) 1985. 07. 31, 特許請求の範囲, 実施例1-28 & J P 7-316524 A, 特許請求の範囲, 実施例1-4 & US 4650829 A	
A	J P 11-286514 A (荒川化学工業株式会社) 1999. 10. 19, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-7
A	EP 845484 A2 (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd) 1998. 06. 03, 特許請求の範囲 & J P 11-130820 A, 特許請求の範囲 & US 6040388 A & US 6376630 A	1-7
A	J P 10-176012 A (出光石油化学株式会社) 1998. 06. 30, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-7
A	J P 6-93015 A (日本合成ゴム株式会社) 1994. 04. 05, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-7